

COPY OF PAPERS  
ORIGINALLY FILED

03C0  
4 #1

PATENT APPLICATION  
Mo-6660  
LeA 34,094

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

APPLICATION OF )  
THOMAS ECKEL ET AL )  
SERIAL NUMBER: 10/006,517 )  
FILED: DECEMBER 3, 2001 )  
TITLE: FLAME-RESISTANT AND )  
HEAT-RESISTANT POLY- )  
CARBONATE COMPOSITIONS )

**CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 USC §119**

Assistant Commissioner for Patents

Washington, D.C. 20231


Sir:

Applicants hereby claim foreign priority benefits under Title 35, United States Code §119, as stated on their previously submitted Declaration and Power of Attorney document. Applicants further submit the enclosed certified copy of German Application 100 61 078.1, claiming foreign priority on the above-identified U.S. application.

Respectfully submitted,

By

Bayer Corporation  
100 Bayer Road  
Pittsburgh, Pennsylvania 15305-9741  
(412) 777-8343  
FACSIMILE PHONE NUMBER:  
(412) 777-8363  
s:\kgb\ap252clp

  
Aron Preis  
Attorney for Applicants  
Reg. No. 29,426

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as first class mail in an envelope addressed to: Assistant Commissioner for Patents Washington, D.C. 20231, on 02/15/02

Date

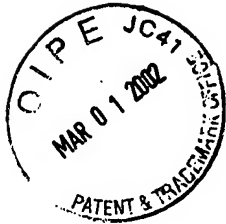
Aron Preis, Reg. No. 29,426

Name of applicant, assignee or  
Registered Representative

Signature

February 15, 2002

Date



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 100 61 078.1

**Anmeldetag:** 8. Dezember 2000

**Anmelder/Inhaber:** Bayer AG, Leverkusen/DE

**Bezeichnung:** Flammwidrige wärmeformbeständige Polycarbonat-Zusammensetzungen

**IPC:** C 08 L, C 08 K

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 22. Oktober 2001  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
Der Präsident  
Im Auftrag

Acurks

**Flammwidrige wärmeformbeständige Polycarbonat-Zusammensetzungen**

5 Die vorliegende Erfindung betrifft mit Phosphorverbindungen flammwidrig ausgerüstete Polycarbonat-Zusammensetzungen, die ein ausgezeichnetes mechanisches Eigenschaftsniveau, eine hohe Wärmeformbeständigkeit einen verbesserten Flammenschutz und verbessertes Fließverhalten (Verarbeitungsverhalten) aufweisen.

10 US-A 5 061 745 beschreibt Formmassen aus aromatischem Polycarbonat, Pfpfopolymerisat und Monophosphat. Diese Mischungen zeigen zwar ein gutes Fließverhalten und einen guten Flammenschutz, haben jedoch häufig nicht die geforderte hohe Wärmeformbeständigkeit. Außerdem weisen Monophosphate aufgrund ihrer Flüchtigkeit nicht bestimmte Verarbeitungsbedingungen zur Wirkungbelagsbildung.

15 In EP-A 0 640 655 werden Formmassen aus aromatischem Polycarbonat, styrolhaltigen Copolymerisaten und Pfpfopolymerisaten beschrieben, die mit monomeren und/oder oligomeren Phosphorverbindungen flammwidrig ausgerüstet werden können. Aufgrund des Anteiles an monomeren Phosphorverbindungen können die vorgenannten Nachteile auftreten.

20 EP-A 747 424 beschreibt die Verwendung einer Kombination von Phosphat mit einem Molekulargewicht von ungefähr 500 bis 2 000 und von Phosphat mit einem Molekulargewicht von ungefähr 2 300 bis 11 000 als Flammenschutzmittel in thermoplastischen Harzen, wobei eine Vielzahl von thermoplastischen Harzen aufgezählt wird. Wegen des hohen Molekulargewichtes der Flammenschutzmittel sich Abstriche  
25 in der Flammenschutzsicherung zu erwarten.

In EP-A-0363608 werden flammwidrige Polymermischungen aus aromatischem Polycarbonat, styrolhaltigem Copolymer oder Pfpfocopolymer sowie einen  
30 oligomeren Phosphat als Flammschutzadditive beschrieben, worin häufig die

geforderte Eigenschaftskombination aus guten Flammschutz und guten Verarbeitungsverhalten nicht erreicht wird.

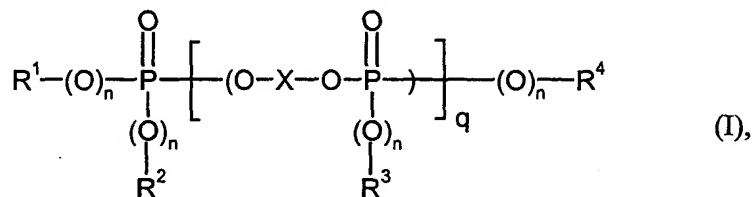
5 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist daher, Polycarbonat-Zusammensetzungen bereitzustellen, die einen verbesserten Flammschutz ein hohe Wärmeformbeständigkeit und verbessertes Fließverhalten (Verarbeitungsverhalten) sowie gute mechanische Eigenschaften aufweisen.

10 Es wurde nun überraschenderweise gefunden, dass durch den Einsatz von Mischungen aus Oligophosphaten mit verschiedener Struktur Formmassen/Formkörper erhalten werden, die das gewünschte Eigenschaftsprofil aufweisen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Zusammensetzungen enthaltend

15 I. mindestens 2 Komponenten ausgewählt aus der Gruppe der aromatischen Poly(ester)carbonate, Ppropfpolymerisate von einem oder mehreren Vinylmonomeren auf eine oder mehrere Ppropfgrundlagen mit einer Glasübergangstemperatur  $<10^{\circ}\text{C}$ , thermoplastischem Vinyl(co)polymerisat sowie

20 II. 0,5 bis 25 Gew.-Teile einer Mischung von Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (I)



worin

25

X für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  unabhängig voneinander, gegebenenfalls halogeniertes  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituiertes  $C_5$ - $C_6$ -Cycloalkyl,  $C_6$ - $C_{20}$ -Aryl oder  $C_7$ - $C_{12}$ -Aralkyl,

5      n      unabhängig voneinander 0 oder 1, vorzugsweise 1,

q      0,5 bis 30 bedeuten,

10      mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung mindestens 2 Phosphorverbindungen der Formel (I) enthält, in denen X oder ein oder mehrere Reste  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  verschieden sind.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind vorzugsweise Zusammensetzungen enthaltend

15

A)      5 bis 95, vorzugsweise 10 bis 90 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 20 bis 80 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyesterarbonat

20

B)      1 bis 60, vorzugsweise 1 bis 40 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2 bis 30 Gew.-Teile, wenigstens eines Pffropfpolymerisats von

B.1      5 bis 95, vorzugsweise 20 bis 60 Gew.-% einem oder mehreren Vinylmonomeren auf

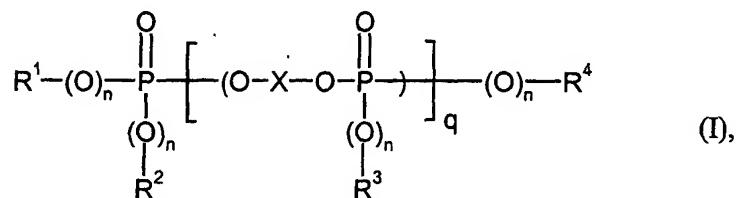
25

B.2      5 bis 95, vorzugsweise 40 bis 80 Gew.-% einem oder mehreren Pffropfgrundlagen mit einer Glasumwandlungstemperatur  $< 10^\circ\text{C}$ , vorzugsweise  $0^\circ\text{C}$ , besonders bevorzugt  $< -20^\circ\text{C}$ ,

30

C)      0 bis 50, vorzugsweise 1 bis 30, besonders bevorzugt 2 bis 25, Gew.-Teile thermoplastisches Vinyl(co)polymerisat und/oder thermoplastisches Polyalkylenterephthalat

- D) 0,5 bis 20 Gew.-Teile, vorzugsweise 1 bis 18 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2 bis 15 Gew.-Teile, Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (I)



5

worin

X für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

10

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig voneinander, gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl substituiertes  $\text{C}_5$ - $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,  $\text{C}_6$ - $\text{C}_{20}$ -Aryl oder  $\text{C}_7$ - $\text{C}_{12}$ -Aralkyl,

15

n unabhängig voneinander 0 oder 1, vorzugsweise 1,

q 1 bis 30 bedeuten,

20

- E) 0,05 bis 5 Gew.-Teile, vorzugsweise 0,1 bis 1 Gew.-Teil, besonders bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gew.-Teile, fluoriertes Polyolefin

mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung mindestens 2 Phosphorverbindungen der Formel (I) enthält, in denen X oder ein oder mehrere Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  verschieden sind.

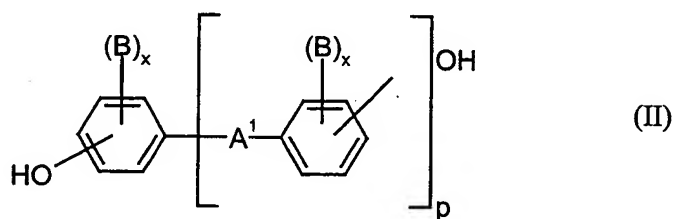
25

# Komponente A

Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-  
 5 estercarbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbe-  
 kannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe bei-  
 spielsweise Schnell, „Chemistry and Physics of Polycarbonates“, Interscience Pub-  
 lishers, 1964, sowie die DE-AS 1 495 626, DE-OS 2 232 877, DE-A 2 703 376,  
 DE-A 2 714 544, DE-A 3 000 610, DE-A 3 832 396; zur Herstellung aromatischer  
 Polyester-  
 10 carbonate z.B. DE-A 3 077 934).

Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z.B. durch Umsetzung von  
 Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aro-  
 matischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalo-  
 geniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung  
 von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Ver-  
 20 wendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispiele-  
 wise Triphenolen oder Tetraphenolen.

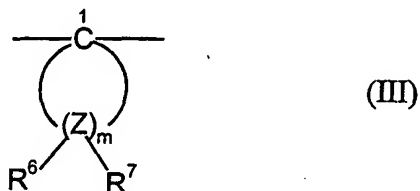
Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen  
 20 Polyester-  
 carbonate sind vorzugsweise solche der Formel (II)



wobei

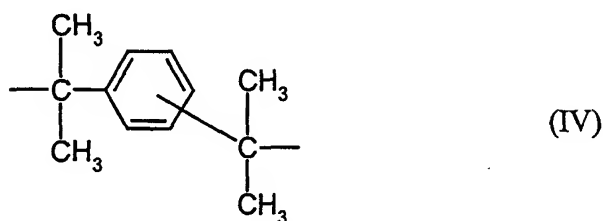
25 A<sup>1</sup> eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalky-  
 liden, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, welches mit weiteren ge-

gegebenenfalls Heteroatome enthaltenden aromatischen Ringen kondensiert sein kann, oder ein Rest der Formel



5

oder ein Rest der Formel (IV)



10     B     unabhängig voneinander C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, insbesondere Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, vorzugsweise Phenyl, C<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-Aralkyl, Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, vorzugsweise Benzyl,

15     x     jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

†     p     1 oder 0 sind, und

20     R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> für jedes Z individuell wählbar, unabhängig voneinander, Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl und/oder Ethyl,

Z     Kohlenstoff und

m     eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten,



mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom Z

R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> gleichzeitig Alkyl sind.

5 Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ - Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole wie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

10

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Diphenylphenol, Bisphenol-A, 2,4- Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1- Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1- Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis-(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

20

Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

25

Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate sind geeignete Kettenabbrecher beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dime-

30

thylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzen-  
den Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-% und 10 Mol-%,  
bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

- 5 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittel-  
molekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z.B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmes-  
sung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

- 10 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise ver-  
zweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezo-  
gen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an  $\geq$  drei-funktionellen Verbindun-  
gen, beispielsweise solchen mit  $\geq$  drei phenolischen Gruppen.

- Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstel-  
ung erfindungsgemäßer Copolycarbonate als Komponente A können auch 1 bis 25  
Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.-% (bezogen auf die Gesamtmenge an einzu-  
setzenden Diphenolen), Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen ein-  
gesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise aus US-Patent 3 419 634) bzw.  
nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-  
20 haltiger Copolycarbonate wird z.B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

- Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die  
Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsum-  
men an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten  
25 Diphenole, insbesondere an 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

- Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Poly-  
estercarbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Tere-  
phthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbon-  
30 säure.

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

Bei der Herstellung von Polyestercarbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen, als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyestercarbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch C<sub>1</sub>-C<sub>22</sub>-Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können sowie aliphatische C<sub>2</sub>-C<sub>22</sub>-Monocarbonsäurechloride in Betracht.

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und im Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrechern auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

Die aromatischen Polyestercarbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-OS 2 940 024 und DE-OS 3 007 934).

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3'-4,4'-Benzophenon-tetracarbonsäuretrichlorid, 1,4,5,8-Naphthalintetracarbonsäuretrichlorid oder Pyromellithsäuretrichlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)-

- nyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis-(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis-[4,4'-dihydroxytri-phenyl)-methyl]-benzol, in  
5 Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-%, bezogen auf eingesetzte Diphenole, verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.
- 10 In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren.
- Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die  
15 Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen.
- Sowohl die Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.
- 20 Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).
- 25 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

### Komponente B

- Die erfindungsgemäße Komponente B stellt Pffropfpolymerisate dar. Diese umfassen  
30 Pffropfcopolymerisate mit kautschukelastischen Eigenschaften, die im wesentlichen aus mindestens 2 der folgenden Monomeren erhältlich sind: Chloropren, Butadien-

1,3, Isopren, Styrol, Acrylnitril, Ethylen, Propylen, Vinylacetat und (Meth)-Acrylsäureester mit 1 bis 18 C-Atomen in der Alkoholkomponente; also Polymerisate, wie sie z.B. in Methoden der Organischen Chemie“ (Houben-Weyl), Bd. 14/1, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406 und in C.B. Bucknall, „Thougened  
5 Plastics“, Appl. Science Publishers, London 1977, beschrieben sind. Bevorzugte Polymerisate B sind partiell vernetzt und besitzen Gelgehalte von über 20 Gew.-%, vorzugsweise über 40 Gew.-%, insbesondere über 60 Gew.-%.

Bevorzugte Pfropfpolymerisate B umfassen Pfropfpolymerisate aus:

10

B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-Teile, einer Mischung aus

15

B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, halogen- oder methyalkernsubstituierten Styrolen, Methylmethacrylat oder Mischungen dieser Verbindungen und

20

B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Acrylnitril, Methacrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl- bzw. phenyl-N-substituierten Maleinimiden oder Mischungen dieser Verbindungen auf

25

B.2 5 bis 95, vorzugsweise 20 bis 70 Gew.-Teilen Polymerisat auf Dien- und/oder Alkylacrylat-Basis mit einer Glasübergangstemperatur unter -10°C.

30

Bevorzugte Pfropfpolymerisate B sind z.B. mit Styrol und/oder Acrylnitril und/oder (Meth)-Acrylsäurealkylestern gepfropfte Grundlagen B.2 wie Polybutadiene, Polyisoprene, Butadien/Styrol- oder Butadien/Acrylnitril-Copolymerisate und Acrylatkautschuke; d.h. Copolymerisate der in der DE-A 1 694 173 (=US-A 3 564 077) beschriebenen Art; mit Acryl- oder Methacrylsäurealkylestern, Vinylacetat, Acrylnitril, Styrol und/oder Alkylstyrolen gepfropfte Polybutadiene, Butadien/Styrol oder

Butadien/Acrylnitril-Copolymerisate, Polyisobutene oder Polyisoprene, wie sie z.B. in der DE-A 2 348 377 (=US-A 3 919 353) beschrieben sind. Besonders bevorzugte Pfropfgrundlagen sind Polybutadiene, die bis zu 50, vorzugsweise bis zu 30 Gew.-% andere Monomere ausgewählt aus der Gruppe Styrol, Acrylnitril oder Acryl- oder  
5 Methacrylsäure-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkylester oder Mischungen hieraus enthalten können.

Besonders bevorzugte Polymerisate B sind z.B. ABS-Polymerisate, wie sie z.B. in der DE-A 2 035 390 (=US-A 3 644 574) oder in der DE-A 2 248 242 (=GB-A 1 409 275) beschrieben sind.

10

Weitere besonders bevorzugte Pfropfpolymerisate B sind erhältlich durch Pfropfreaktion von

α 10 bis 70, vorzugsweise 15 bis 50, insbesondere 20 bis 40 Gew.-%, bezogen  
15 auf Pfropfpolymerisat B, mindestens eines (Meth)-Acrylsäureesters oder 10 bis 70, vorzugsweise 15 bis 50, insbesondere 20 bis 40 Gew.-% eines Gemisches aus 10 bis 50, vorzugsweise 20 bis 35 Gew.-%, bezogen auf Gemisch, Acrylnitril oder (Meth)-Acrylsäureester und 50 bis 90, vorzugsweise 65 bis 80 Gew.-%, bezogen auf Gemisch, Styrol, als Pfropfaufgabe B.1 auf

20

β 30 bis 90, vorzugsweise 50 bis 85, insbesondere 60 bis 80 Gew.-%, bezogen  
auf Pfropfpolymerisat B, eines Butadienpolymerisats mit mindestens 50 Gew.-%, bezogen auf β, Butadienresten als Pfropfgrundlage B.2.

25 Der Gelanteil der Pfropfgrundlage β beträgt im allgemeinen mindestens 20 Gew.-%, vorzugsweise 40 Gew.-% (in Toluol gemessen), der Pfropfgrad G 0,15 bis 0,55 und der mittlere Teilchendurchmesser d<sub>50</sub> des Pfropfpolymerisats B.2 0,05 bis 2 µm, vorzugsweise 0,1 bis 0,6 µm.

30 (Meth)-Acrylsäureester α sind Ester der Acrylsäure oder Methacrylsäure mit einwertigen Alkoholen mit 1 bis 18 C-Atomen. Besonders bevorzugt sind Methacrylsäure-

methylester, -ethylester und -propylester, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat und t-Butylmethacrylat.

Die Pffropfgrundlage  $\beta$  kann neben Butadienresten bis zu 50 Gew.-%, bezogen auf  $\beta$ ,  
5 Reste anderer ethylenisch ungesättigter Monomeren, wie Styrol, Acrylnitril, Ester der  
Acryl- oder Methacrylsäure mit 1 bis 4 C-Atomen in der Alkoholkomponente (wie  
Methylacrylat, Ethylacrylat, Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), Vinylester  
und/oder Vinylether enthalten. Die bevorzugte Pffropfgrundlage  $\beta$  besteht aus reinem  
Polybutadien.

10

Der Pffropfgrad G bezeichnet das Gewichtsverhältnis von aufgepfropften Pffropfmo-  
nomenen zur Pffropfgrundlage und ist dimensionslos.

15

Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen  
jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugenmessung  
(W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-796) bestimmt  
werden.

20

Besonders bevorzugte Polymerisate B sind z.B. auch Pffropfpolymerisate aus

$\tau$ . 20 bis 90 Gew.-%, bezogen auf Komponente B, Acrylatkautschuk mit einer  
Glasübergangstemperatur  $< -20^{\circ}\text{C}$  als Pffropfgrundlage B.2 und

25

$\delta$ . 10 bis 80 Gew.-%, bezogen auf Komponente B, mindestens eines polymeri-  
sierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren als Pffropfmonomere B.1.

30

Die Acrylatkautschuke  $\tau$  der Polymerisate B sind vorzugsweise Polymerisate aus  
Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf  $\tau$ , anderen  
polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten poly-  
merisierbaren Acrylsäureestern gehören  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkylester, beispielsweise Methyl-,  
Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethyl-hexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise

Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkylester, wie Chlorethylacrylat, sowie Mischungen dieser Monomeren.

5 Zur Vernetzung können Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung copolymerisiert werden. Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere sind Ester ungesättigter Monocarbonsäuren mit 3 bis 8 C-Atomen und ungesättigter einwertiger Alkohole mit 3 bis 12 C-Atomen oder gesättigter Polyole mit 2 bis 4 OH-Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie z.B. Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat.

15 Bevorzugt vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens 3 ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Trivinylcyanurat, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole.

20 Die Menge der vernetzenden Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pfropfgrundlage  $\tau$ .

25 Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens 3 ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pfropfgrundlage  $\tau$  zu beschränken.

30 Bevorzugt „andere“ polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pfropfgrundlage  $\tau$  dienen können, sind z.B. Acrylnitril, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als



Pfropfgrundlage  $\tau$  sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

5 Weitere geeignete Pfropfgrundlagen gemäß B.2 sind Silikonkautschuke mit pfropf-  
aktiven Stellen, wie sie in DE-A 3 704 657, DE-A 3 704 655, DE-A 3 631 540 und  
DE-A 3 631 539 beschrieben werden.

10 Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in Dimethylformamid  
bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg  
Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

Die Pfropfpolymerisate B können nach bekannten Verfahren wie Masse-, Suspensions-, Emulsions- oder Masse-Suspensionsverfahren hergestellt werden.

15 Da bei der Pfropfreaktion die Pfropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Pfropfgrundlage aufgepfropft werden, werden erfindungsgemäß unter  
Pfropfpolymerisaten B nur solche Produkte verstanden, die durch Polyreaktion der  
Pfropfmonomere auf die Pfropfgrundlage gewonnen werden.

20 Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen  
jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugennmessung  
(W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796)  
bestimmt werden.

25 **Komponente C**

Die Komponente C umfasst ein oder mehrere thermoplastische Vinyl (co)polymerisate C.1 und/oder Polyalkylenterephthalate C.2.

30 Geeignet sind als Vinyl(co)Polymerisate C.1 Polymerisate von mindestens einem  
Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile),

(Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus

- 5 C.1.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kern-substituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und
- 10 C.1.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise
- 15 Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

Die (Co)Polymerisate C.1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus C.1.1 Styrol und C.1.2 Acrylnitril.

20

Die (Co)Polymerisate gemäß C.1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate besitzen vorzugsweise Molekulargewichte  $\bar{M}_w$  (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation)

25 zwischen 15 000 und 200 000.

Die Polyalkylenterephthalate der Komponente C.2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen

30 Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

5

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

10

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

15

20

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-OS 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

25

30

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol

und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

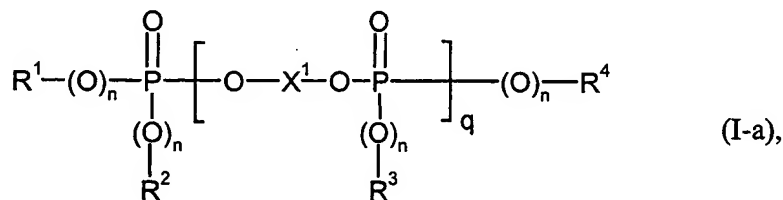
Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

#### 15 Komponente D

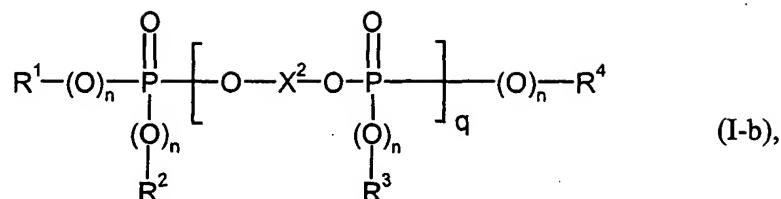
Die erfindungsgemäßen Formmassen enthalten als Flammenschutzmittel wenigstens eine Phosphorverbindung der Formel (I-a)



wobei die Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$ ,  $n$  und  $q$  die oben angegebene Bedeutung haben,

$\text{X}^1$  für einen ein oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

und wenigstens eine Phosphorverbindung der Formel (I-b)



wobei die Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$ ,  $n$  und  $q$  die oben angegebene Bedeutung haben,

und

$\text{X}^2$  für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

mit der Maßgabe, dass mindestens einer der Reste  $\text{X}^1$ ,  $\text{X}^2$ ,  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  in Formel (Ia) und (Ib) verschieden sind.

Die aromatischen Gruppen in der Definition von  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  können ihrerseits unabhängig voneinander mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

$q$  steht für Werte von 0,5 bis 30, vorzugsweise für einen durchschnittlichen Wert von 1 bis 30, besonders bevorzugt 1 bis 20, insbesondere 1 bis 10. Bei Gemischen von Phosphorverbindungen kann  $q$  die obengenannten durchschnittlichen Werte annehmen. In diesem Gemisch können Monophosphorverbindungen und/oder oligomere und/oder polymere Phosphorverbindungen enthalten sein. Im Falle von  $q = 0$  beschreibt die Formel (I) Monophosphorverbindungen.

X<sup>1</sup> und X<sup>2</sup> sind jeweils bevorzugt verschieden und stehen für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen. Bevorzugte Reste leiten sich von Diphenolen gemäß Formel (II) ab.

- 5 Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole wie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

10

- Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Diphenylphenol, Bisphenol-A, 2,4- Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1- Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1- Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis-(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

15

- Besonders bevorzugte Diphenole sind Bisphenol A, Resorcin, Hydrochinon, Dihydroxydiphenyl und Dihydroxydiphenylsulfon.

20

- Mischungen aus Phosphorverbindungen der Formel (I), vorzugsweise mono- und/oder oligomeren Phosphaten der Formel (I), mit durchschnittlichen q-Werten von 1 bis 20, insbesondere 1 bis 10 werden als Komponente D besonders bevorzugt eingesetzt.

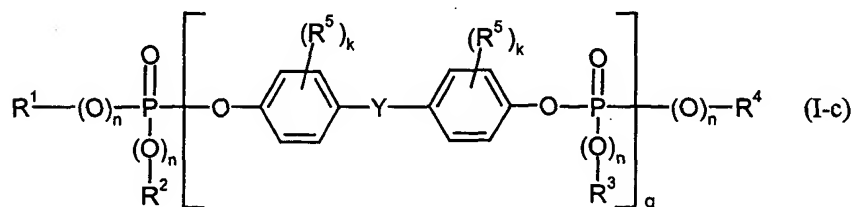
25

- Als Monophosphorverbindungen, d.h.  $q = 0$  kommen Verbindungen in Frage wie Tributylphosphat, Tris-(2-chlorethyl)-phosphat, Tris-(2,3-dibrompropyl)-phosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, halogensubstituierte Arylphosphate, Methylphosphonsäuredimethylester, Methylphosphonsäure-

30

diphenylester, Phenylphosphonsäurediethylester, Triphenylphosphinoxid oder Trikresylphosphinoxid.

Vorzugsweise enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen als Flammenschutzmittel  
5 mindestens eine Phosphorverbindung gemäß Formel (I-c),



in denen  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $n$  und  $q$  die o.g. Bedeutungen haben.  $\text{R}^5$  steht unabhängig  
10 für  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl und/oder Halogen,  $k$  steht für 0, 1 oder 2, bevorzugt für 0,  $\text{Y}$  für Methylen oder Isopropyliden. Besonders bevorzugt stellt  $\text{Y}$  einen Isopropyliden-Rest dar.

Die Phosphorverbindungen gemäß Komponente D sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie bzw. lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (vgl. z.B. Ullmanns Encyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 18, S. 301 ff. 179; Houben-Weyl, Methoden der Organischen chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beistein, Bd. 6, S. 177), indem zum Aufbau wenigstens 2 verschiedene Dihydroxyverbindungen, z.B. Bisphenole, Hydrochinon, eingesetzt werden.

20

#### Komponente E

Die fluorierten Polyolefine E sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über  $-30^\circ\text{C}$ , in der Regel von über  $100^\circ\text{C}$ , Fluorgehalte, vorzugsweise  
25 von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$  von 0,05 bis 1 000, vorzugsweise 0,08 bis 20  $\mu\text{m}$ . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine E eine Dichte von 1,2 bis 2,3  $\text{g/cm}^3$ . Bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen

(Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate. Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. "Vinyl and Related Polymers" von Schildknecht, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1962, Seite 484-494; "Fluoropolymers" von Wall, Wiley-Interscience, John Wiley & Sons, Inc., New York, Band 13, 1970, Seite 623-654; "Modern Plastics Encyclopedia", 1970-1971, Band 47, Nr. 10 A, Oktober 1970, 5 Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 134 und 774; "Modern Plastics Encyclopedia", 1975-1976, Oktober 1975, Band 52, Nr. 10 A, Mc Graw-Hill, Inc., New York, Seite 27, 28 und 472 und US-PS 3 671 487, 3 723 373 und 3 838 092).

10 Sie können nach bekannten Verfahren hergestellt werden, so beispielsweise durch Polymerisation von Tetrafluorethylen in wässrigem Medium mit einem freie Radikale bildenden Katalysator, beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Ammoniumperoxydisulfat bei Drücken von 7 bis 71 kg/cm<sup>2</sup> und bei Temperaturen von 0 bis 200°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 100°C. (Nähere Einzelheiten s. z. B. US-  
15 Patent 2 393 967). Je nach Einsatzform kann die Dichte dieser Materialien zwischen 1,2 und 2,3 g/cm<sup>3</sup>, die mittlere Teilchengröße zwischen 0,5 und 1 000 µm liegen.

Erfindungsgemäß bevorzugte fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 0,05 bis 20 µm, vorzugsweise 0,08 bis  
20 10 µm, und eine Dichte von 1,2 bis 1,9 g/cm<sup>3</sup> und werden vorzugsweise in Form einer koagulierten Mischung von Emulsionen der Tetrafluorethylenpolymerisate E mit Emulsionen der Pffropfpolymerisate B eingesetzt.

25 Geeignete, in Pulverform einsetzbare fluorierte Polyolefine E sind Tetrafluorethylenpolymerisate mit mittleren Teilchendurchmesser von 100 bis 1 000 µm und Dichten von 2,0 g/cm<sup>3</sup> bis 2,3 g/cm<sup>3</sup>.

Zur Herstellung einer koagulierten Mischung aus B und E wird zuerst eine wässrige Emulsion (Latex) eines Pffropfpolymerisates B mit einer feinteiligen Emulsion eines  
30 fluorierten Polyolefins E vermischt; geeignete Emulsionen von fluorierten Polyole-



finen besitzen üblicherweise Feststoffgehalte von 30 bis 70 Gew.-%, insbesondere von 50 bis 60 Gew.-%, vorzugsweise von 30 bis 35 Gew.-%.

5 Die Mengenangabe bei der Beschreibung der Komponente B schließt den Anteil des Pfpfropfpolymerisats für die koagulierte Mischung aus Pfpfropfpolymerisat und fluoriertem Polyolefinen nicht ein.

10 In der Emulsionsmischung liegt das Gleichgewichtsverhältnis Pfpfropfpolymerisat B zum fluorierten Polyolefin E bei 95:5 bis 60:40. Die Emulsionsmischung wird in bekannter Weise koaguliert, beispielsweise durch Sprühtrocknen, Gefriertrocknung oder Koagulation mittels Zusatz von anorganischen oder organischen Salzen, Säuren, Basen oder organischen, mit Wasser mischbaren Lösemitteln, wie Alkoholen, Ketonen, vorzugsweise bei Temperaturen von 20 bis 150°C, insbesondere von 50 bis 100°C. Falls erforderlich, kann bei 50 bis 200°C, bevorzugt 70 bis 100°C, getrocknet werden.

Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon 30 N angeboten.

20 Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können wenigstens eines der üblichen Additive, wie Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren sowie Farbstoffe, Pigmente und/oder Verstärkungsmaterialien enthalten. Als anorganische Verstärkungsmaterialien kommen Glasfasern, ggf. geschnitten oder gemahlen, Glasperlen, Glaskugeln, blättchenförmiges Verstärkungsmaterial, wie  
25 Kaolin, Talk, Glimmer, Mika, Kohlefasern in Frage. Vorzugsweise werden als Verstärkungsmaterial geschnittene oder gemahlene Glasfasern, vorzugsweise mit einer Länge von 1 bis 10 mm und einem Durchmesser von <20µm in einer Menge von 1 bis 40 Gew.-Teilen eingesetzt; vorzugsweise sind die Glasfasern oberflächenbehandelt.

30

- Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können darüber hinaus wenigstens eine polare Verbindung wenigstens eines der Metalle der 1. bis 5. Hauptgruppe oder der 1. bis 8. Nebengruppe des Periodensystems mit mindestens einem Element ausgewählt aus der Gruppe von Sauerstoff, Schwefel, Bor, Kohlenstoff, Phosphor, Stickstoff, Wasserstoff und Silizium als feinstverteiltes anorganisches Pulver enthalten. Vorzugsweise werden als polare Verbindung ein Oxid oder Hydroxid, vorzugsweise  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{ZnO}$ , Böhmit,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , Eisenoxide, deren Mischungen und dotierte Verbindungen, besonders bevorzugt Böhmit oder  $\text{TiO}_2$ .
- 10 Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können ein oder mehrere weitere, gegebenenfalls synergistisch wirkenden Flammenschutzmittel enthalten. Beispielhaft werden als weitere Flammenschutzmittel von Komponente D verschiedene Phosphorverbindungen, organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg-, Al-Hydroxid, anorganische Verbindungen, wie Antimonoxide, Bariummetaborat, Hydroxoantimonat, Zirkonoxid, Zirkonhydroxid, Molybdenoxid, Ammoniummolybdat, Zinkborat, Ammoniumborat und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt. Diese Flammenschutzmittel werden im allgemeinen in einer Menge bis zu 20 Gew.-% (bezogen auf die Gesamt-Formmasse) zugesetzt.
- 25 Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen enthaltend die Komponenten A bis E und gegebenenfalls weiteren bekannten Zusätzen wie Stabilisatoren, Farbstoffen, Pigmenten, Gleit- und Entformungsmitteln, Nukleiermittel, Nanopartikel sowie Antistatika und Verstärkungsmaterialien und Flammenschutzmittel, werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert, wobei die Komponente E vorzugsweise in Form der bereits erwähnten koagulierten Mischung eingesetzt wird.
- 30

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

5

Die Zusammensetzungen der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörper durch Spritzguss hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuse-  
teile jeder Art, z. B. für Haushaltsgeräte wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer,  
10 für Büromaschinen wie Monitore, Drucker, Kopierer oder Abdeckplatten für den Bausektor und Teile für den Kfz-Sektor. Sie werden außerdem auf dem Gebiet der Elektrotechnik eingesetzt, weil sie sehr gute elektrische Eigenschaften haben.

15

Weiterhin können die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen beispielsweise zur Herstellung von folgenden Formkörpern bzw. Formteilen verwendet werden:

20

Innenausbauteile für Schienenfahrzeuge (FR), Radkappen, Gehäuse von Kleintensformatoren enthaltenden Elektrogeräten, Gehäuse für Geräte zur Informationsverbreitung und -Übermittlung, Gehäuse und Verkleidungen für medizinische  
Zwecke, Massagegeräte und Gehäuse dafür, Spielfahrzeuge für Kinder, flächige  
Wandelemente, Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen, Heckspoiler, wärmeisolierte  
Transportbehältnisse, Vorrichtung zur Haltung oder Versorgung von Kleintieren,  
Formteile für Sanitär- und Badeausrüstungen, Abdeckgitter für Lüfteröffnungen,  
Formteile für Garten- und Gerätehäusern, Gehäuse für Gartengeräte.

25

Weitere Anwendungen sind möglich

30

als Dateitechnikgeräte: Telekommunikationsgeräte wie Telefongeräte und Telefaxe, Computer, Drucker, Scanner, Plotter, Monitor, Tastatur, Schreibmaschine, Diktiergeräte, usw.,

als Elektrogeräte: Netzteile, Ladegeräte, Kleintransformatoren für Computer und Unterhaltungselektronik, Niederspannungstransformatoren, usw.,

5 als Gartengeräte: Gartenmöbel, Rasenmähergehäuse, Rohre und Gehäuse für Gartenbewässerung, Gartenhäuser, Laubsauger, Schredder, Häcksler, Spritzgeräte usw.,

10 im Möbelbereich: Arbeitsplatten, Möbellamine, Rolladenelemente, Büromöbel, Tische, Stühle, Sessel, Schränke, Regale, Türelemente, Fensterelemente, Bettkästen usw.,

als Sport-/Spielgeräte: Spielfahrzeuge, Sitzflächen, Pedale, Sportgeräte, Fahrräder, Tischtennisplatte, Heimtrainer, Golf-Caddys, Snow boards, Bootsaußenteile, Campingartikel, Strandkörbe usw.,

15 im Bausektor innen/außen: Hausverkleidung, Profilleiste, Rohre, Kabel, Rolladenelemente, Briefkästen, Lampengehäuse, Dachziegel, Fliesen, Trennwände, Kabelkanäle, Fußbodenleiste, Steckdosen usw.

20 im Bereich der Kfz/Schienenfahrzeuge: Wand-, Decken-Verkleidungen, Sitzschalen, Sitze, Bänke, Tische, Gepäckablagen, Radkappen, Heckspoiler, Kotflügel, Heckklappen, Motorhauben, Seitenteile usw.

Besonders geeignet sind die Zusammensetzungen zur Herstellung von Formteilen, wo besonders hohe Ansprüche an die Wärmeformbeständigkeit der eingesetzten Kunststoffe gestellt werden.

25

Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.

30 Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen zur Herstellung von Formkörpern jeg-

licher Art, vorzugsweise der oben genannten, sowie die Formkörper aus den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen.

**Beispiele****Komponente A.1**

- 5 Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,272, gemessen in  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  als Lösungsmittel bei  $25^\circ\text{C}$  und einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

**Komponente B.1**

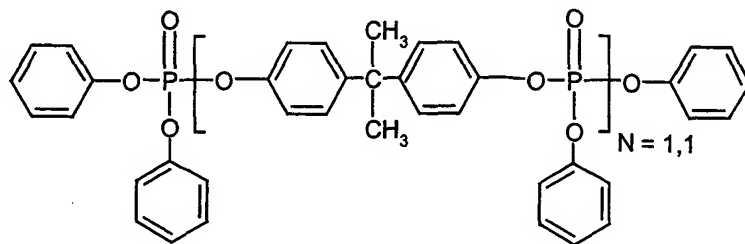
- 10 Pfropfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser  $d_{50} = 0,34 \mu\text{m}$ ), hergestellt durch Emulsionspolymerisation.

**Komponente B.2**

- 15 Pfropfpolymerisat von 84 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 16 Gew.-Teile vernetzten Polybutadienkautschuk, hergestellt durch Massepolymerisation.

**Komponente D.1**

20



Reofos BAPP der Fa. Great Lakes Chem.

**Komponente D.2**

- 25 m-Phylen-bis(di-phenyl-phosphat), Fyrolflex® RDP der Firma Akzo.

**Komponente E.1**

5 Tetrafluorethylenpolymerisat als koagulierte Mischung aus einer SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion gemäß o.g. Komponente B in Wasser und einer Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion in Wasser. Das Gewichtsverhältnis Pfropfpolymerisat B zum Tetrafluorethylenpolymerisat E in der Mischung ist 90 Gew.-% zu 10 Gew.-%. Die Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 60 Gew.-%, der mittlere Teilchendurchmesser liegt zwischen 0,05 und 0,5  $\mu\text{m}$ . Die SAN-Pfropfpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 34 Gew.-% und einen mittleren Latexteilchendurchmesser von  $d_{50} = 0,28 \mu\text{m}$ .

10

Die Emulsion des Tetrafluorethylenpolymerisats (Teflon 30 N der Fa. DuPont) wird mit der Emulsion des SAN-Pfropfpolymerisats B vermischt und mit 1,8 Gew.-%, bezogen auf Polymerfeststoff, phenolischer Antioxidantien stabilisiert. Bei 85 bis 95°C wird die Mischung mit einer wässrigen Lösung von  $\text{MgSO}_4$  (Bittersalz) und Essigsäure bei pH 4 bis 5 koaguliert, filtriert und bis zur praktischen Elektrolytfreiheit gewaschen, anschließend durch Zentrifugation von der Hauptmenge Wasser befreit und danach bei 100°C zu einem Pulver getrocknet. Dieses Pulver kann dann mit den weiteren Komponenten in den beschriebenen Aggregaten compoundingiert werden.

15

**Herstellung und Prüfung der erfindungsgemäßen Formmassen**

20

Das Mischen der Komponenten erfolgt auf einem 3-l-Innenkneteter. Die Formkörper werden auf einer Spritzgießmaschine Typ Arburg 270 E bei 260°C hergestellt.

25 Die Bestimmung der Kerbschlagzähigkeit  $a_K$  wird gemäß ISO 180/1 A durchgeführt.

Das Brandverhalten der Proben wurde nach UL-Subj. 94 V an Stäben der Abmessung 127 x 12,7 x 1,6 mm gemessen, hergestellt auf einer Spritzgussmaschine bei 260°C.

30

Der UL 94 V-Test wird wie folgt durchgeführt:

Substanzproben werden zu Stäben der Abmessungen 127 x 12,7 x 1,6 mm geformt. Die Stäbe werden vertikal so montiert, dass die Unterseite des Probekörpers sich 305 mm über einen Streifen Verbandstoff befindet. Jeder Probestab wird einzeln  
5 mittels zweier aufeinanderfolgender Zündvorgänge von 10 s Dauer entzündet, die Brenneigenschaften nach jedem Zündvorgang werden beobachtet und danach die Probe bewertet. Zum Entzünden der Probe wird ein Bunsenbrenner mit einer 100 mm (3,8 inch) hohen blauen Flamme von Erdgas mit einer Wärmeeinheit von  $3,73 \times 10^4 \text{ kJ/m}^3$  (1000 BTU per cubic foot) benutzt.

10

Die UL 94 V-O-Klassifizierung umfasst die nachstehend beschriebenen Eigenschaften von Materialien, die gemäß der UL 94 V-Vorschrift geprüft werden. Die Formmassen in dieser Klasse enthalten keine Proben, die länger als 10 s nach jeder Einwirkung der Testflamme brennen; sie zeigen keine Gesamtflamzeit von mehr als  
15 50 s bei der zweimaligen Flammeinwirkung auf jeden Probesatz; sie enthalten keine Proben, die vollständig bis hinauf zu der am oberen Ende der Probe befestigten Halteklammer abbrennen; sie weisen keine Proben auf, die die unterhalb der Probe angeordnete Watte durch brennende Tropfen oder Teilchen entzünden; sie enthalten auch keine Proben, die länger als 30 s nach Entfernen der Testflamme glimmen.

20

Andere UL 94-Klassifizierungen bezeichnen Proben, die weniger flammwidrig oder weniger selbstverlöschend sind, weil sie flammende Tropfen oder Teilchen abgeben. Diese Klassifizierungen werden mit UL 94 V-1 und V-2 bezeichnet. N.B. heißt „nicht bestanden“ und ist die Klassifizierung von Proben, die eine Nachbrennzeit von  
25  $\geq 30 \text{ s}$  aufweisen.

Schmelzviskosität wird bestimmt nach DIN 54 811

MVR wird bestimmt nach ISO 1133



Eine Zusammenstellung der Eigenschaften der erfindungsgemäßen Formmassen ist in der nachfolgenden Tabelle 1 gegeben:

Tabelle 1

Zusammensetzungen und Eigenschaften  
(Mengenangabe in Gew.-%)

	1(Vgl.)	2(Vgl.)	3	4	5
A1	67,50	69,20	68,40	67,90	68,8
B1	13,10	13,50	13,30	13,25	13,40
B2	1,50	1,60	1,50	1,50	1,55
D1	13,00	-	5,95	9,75	3,25
D2	-	10,80	5,95	2,70	8,10
E1	4,50	4,50	4,50	4,50	4,50
Entformungsmittel	0,40	0,40	0,40	0,40	0,40
Phosphor-Gehalt	1,16	1,16	1,16	1,16	1,16
$a_k$ [kJ/m <sup>2</sup> ]	45	45	45	45	45
ISO 180 1A					
Vicat B 120 [°C]	98	97	99	99	98
Gesamtnachbrennzeit [sec.] (UL 94 V)					
3,2 mm	19	12	8	9	7
1,6 mm	68	49	24	29	24
Schmelzviskositätsfakten					
bei 260°C, 1000 s <sup>-1</sup> [Pas]	166	161	150	158	148
MVR (240/5) [cm <sup>3</sup> /10 min]	22,6	23,2	24,7	24,1	26,4

Die erfindungsgemäßen Formmassen enthalten eine Mischung aus zwei strukturell unterschiedlichen Oligophosphaten und zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination aus hoher Kerbschlagzähigkeit, hoher Wärmeformbeständigkeit, gutem Verarbeitungsverhalten und verbesserter Flammwidrigkeit aus.

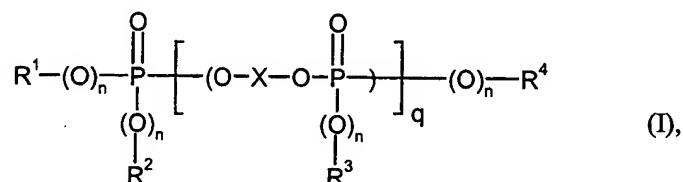
**Patentansprüche**

## 1. Zusammensetzungen enthaltend

5 I. mindestens 2 Komponenten ausgewählt aus der Gruppe der aromatischen Poly(ester)carbonate, Pfpfopolymerisate von einem oder mehreren Vinylmonomeren auf eine oder mehrere Pfpfgrundlagen mit einer Glasübergangstemperatur  $<10^{\circ}\text{C}$ , thermoplastischem Vinyl-

10

II. 0,5 bis 25 Gew.-Teile einer Mischung von Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (I)



15

worin

X für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

20

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> unabhängig voneinander, gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>-Aryl oder C<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-Aralkyl,

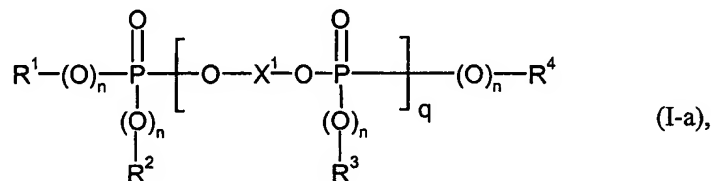
25

n unabhängig voneinander 0 oder 1, vorzugsweise 1,

q 0,5 bis 30 bedeuten,

mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung mindestens 2 Phosphorverbindungen der Formel (I) enthält, in denen X oder ein oder mehrere Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> verschieden sind.

- 5      2. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend wenigstens eine Phosphorverbindung der Formel (I-a)

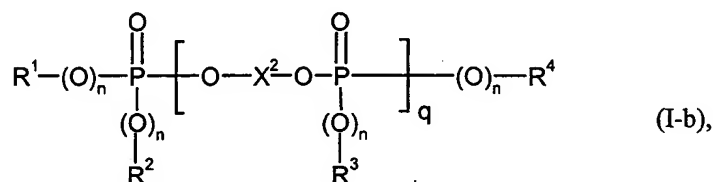


10      wobei die Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup>, n und q die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

X<sup>1</sup> für einen ein oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

15

und wenigstens eine Phosphorverbindung der Formel (I-b)



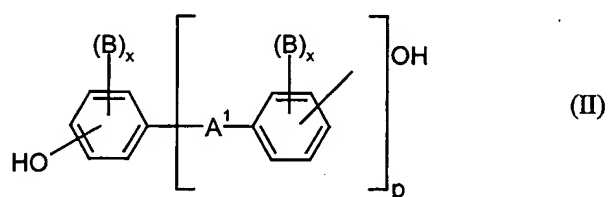
20      wobei die Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup>, n, q und z die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben,

und

X<sup>2</sup> für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

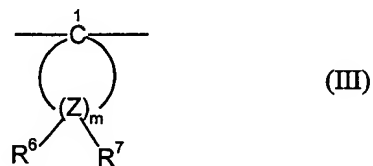
mit der Maßgabe, dass X<sup>1</sup> oder X<sup>2</sup> oder ein oder mehrere R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> jeweils verschieden sind.

3. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 oder 2, wobei X<sup>1</sup> und X<sup>2</sup> sich von Diphenolen der Formel (II) ableiten:

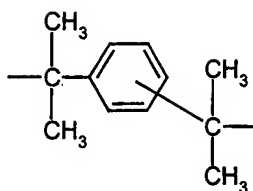


wobei

A<sup>1</sup> eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyliden, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, welches mit weiteren gegebenenfalls Heteroatome enthaltenden aromatischen Ringen kondensiert sein kann, oder ein Rest der Formel

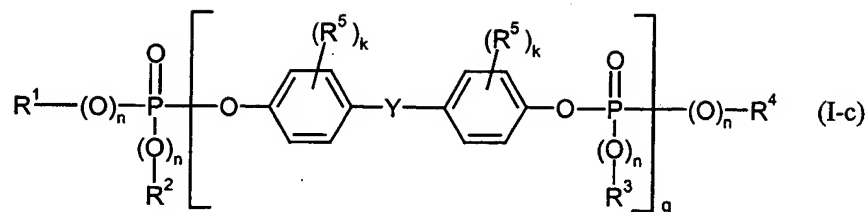


oder ein Rest der Formel (IV)



(IV)

- 5                    B    unabhängig voneinander C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, C<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-Aralkyl,
- x    jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,
- p    1 oder 0 sind, und
- 10                   R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> für jedes Z individuell wählbar, unabhängig voneinander, Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl
- Z    Kohlenstoff und
- 15                   m    eine ganze Zahl von 4 bis 7 bedeuten,
- mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom Z
- R<sup>6</sup> und R<sup>7</sup> gleichzeitig Alkyl sind.
- 20                   4.    Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 3, worin X, X<sup>1</sup> und X<sup>2</sup> sich ableiten von Bisphenol A, Resorcin, Hydrochinon, Dihydroxydiphenyl oder Dihydrodiphenylsulfon.
- 25                   5.    Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 3, enthaltend mindestens eine Phosphorverbindung gemäß Formel (I-c),



in der R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, n und q die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben, Y einen Isopropyliden-Rest, R<sup>5</sup> unabhängig C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl und/oder Halogen, k 0, 1 oder 2 bedeuten.

6. Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 5 enthaltend Pfropfcopolymerisate basierend auf mindestens 2 Monomeren ausgewählt aus der Gruppe von Chloropren, Butadien-1,3, Isopren, Styrol, Acrylnitril, Ethylen, Propylen, Vinylacetat und (Meth)-Acrylsäureester mit 1 bis 18 C-Atomen in der Alkoholkomponente.

7. Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 6 enthaltend Pfropfpolymerisate basierend auf

B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-Teile, einer Mischung aus

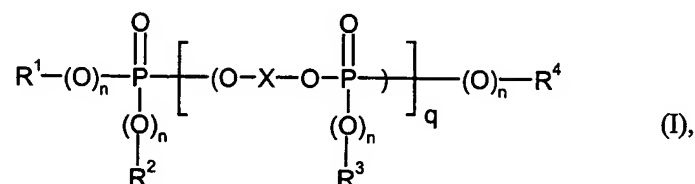
B.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Styrol, α-Methylstyrol, halogen- oder methylkernsubstituierten Styrolen, Methylmethacrylat oder Mischungen dieser Verbindungen und

B.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Acrylnitril, Methacrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl- bzw. N-Phenyl-substituierten Maleinimiden oder Mischungen dieser Verbindungen und

- B.2 5 bis 95, vorzugsweise 20 bis 70 Gew.-Teilen Polymerisat auf Dien- oder Alkylacrylat-Basis oder Mischungen hieraus mit einer Glasübergangstemperatur unter  $-10^{\circ}\text{C}$ .
- 5 8. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 7, wobei B.2 ausgewählt ist aus Polybutadienen, Polyisoprenen oder Butadien/Styrol- oder Butadien/Acrylnitril-Copolymerisaten oder Acrylatkautschuken oder Mischungen hieraus.
- 10 9. Zusammensetzungen gemäß Ansprüche 1 bis 8 enthaltend als Vinyl(co)Polymerisate Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide, (Meth)Acrylsäure-( $\text{C}_1\text{-C}_8$ )-Alkylester, ungesättigten Carbonsäuren sowie Derivate ungesättigter Carbonsäuren.
- 15 10. Zusammensetzungen gemäß Ansprüche 1 bis 9 enthaltend Antidripping-Mittel.
- 20 11. Zusammensetzungen enthaltend
- A) 5 bis 95 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder Polyester-carbonat
- B) 1 bis 60 Gew.-Teile, wenigstens eines Pfropfpolymerisats von
- 25 B.1 5 bis 95 Gew.-% eines oder mehrerer Vinylmonomeren auf
- B.2 5 bis 95 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit einer Glasumwandlungstemperatur  $< 10^{\circ}\text{C}$ .
- 30 C) 0 bis 50 Gew.-Teile thermoplastisches Vinyl(co)polymerisat und/oder thermoplastisches Polyalkylenterephthalat



D) 0,5 bis 20 Gew.-Teile Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (I)



worin

5

X für einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen steht,

10

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig voneinander, gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Halogen und/oder  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl substituiertes  $\text{C}_5$ - $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,  $\text{C}_6$ - $\text{C}_{20}$ -Aryl oder  $\text{C}_7$ - $\text{C}_{12}$ -Aralkyl,

15

n unabhängig voneinander 0 oder 1, vorzugsweise 1,

q 1 bis 30 bedeuten,

E) 0,05 bis 5 Gew.-Teile Antidripping Mittel,

20

mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung mindestens 2 Phosphorverbindungen der Formel (I) enthält, in denen X oder ein oder mehrere Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  verschieden sind.

25

12. Verwendung der Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 11 zur Herstellung von Formteilen, Folien oder Platten.

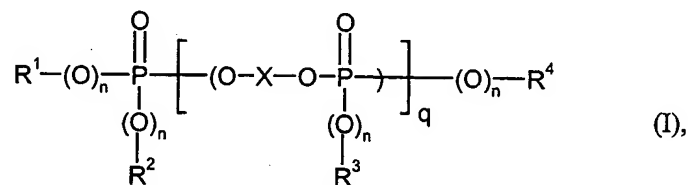
13. Formteile, Folien oder Platten erhältlich aus Zusammensetzungen gemäß der Ansprüche 1 bis 11.

Flammwidrige wärmeformbeständige Polycarbonat-Zusammensetzungen

## Zusammenfassung

Zusammensetzungen enthaltend

- I. mindestens 2 Komponenten ausgewählt aus der Gruppe der aromatischen Poly(ester)carbonate, Ppropfpolymerisate von einem oder mehreren Vinylmonomeren auf eine oder mehrere Ppropfgrundlagen mit einer Glasübergangstemperatur  $< 10^{\circ}\text{C}$ , thermoplastischem Vinyl(co)polymerisat oder Polyalkylenterephthalat sowie
- II. 0,5 bis 25 Gew.-Teile einer Mischung von Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (I)



mit der Maßgabe, dass die Zusammensetzung mindestens 2 Phosphorverbindungen der Formel (I) enthält, in denen X oder ein oder mehrere Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  verschieden sind.